

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-11930

(43)公開日 平成11年(1999) 1月19日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>  
C 0 1 B 33/18  
B 0 1 J 3/00  
// C 0 8 K 3/36

識別記号

F I  
C 0 1 B 33/18  
B 0 1 J 3/00  
C 0 8 K 3/36

D  
A

審査請求 未請求 請求項の数2 O L (全 4 頁)

(21)出願番号 特願平9-168345

(22)出願日 平成9年(1997) 6月25日

(71)出願人 000005832

松下電工株式会社

大阪府門真市大字門真1048番地

(72)発明者 古森 清孝

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(72)発明者 大津 正明

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(72)発明者 橋本 眞治

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

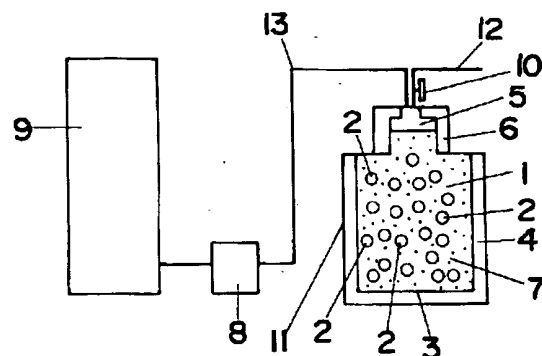
(74)代理人 弁理士 西川 恵清 (外1名)

(54)【発明の名称】 無機フィラーの精製方法

(57)【要約】

【課題】 高純度の無機フィラーを簡単に得ることができる無機フィラーの精製方法を提供する。

【解決手段】 200～450℃、20～60MPaの高温高压水又は超臨界水1の中で無機フィラー2を加熱加圧する。無機フィラー2に含まれる放射性元素を高温高压水又は超臨界水1に溶出させて除去することができる。



- 1 高温高压水又は超臨界水  
2 無機フィラー

【特許請求の範囲】

【請求項1】 200～450℃、20～60MPaの高温高圧水又は超臨界水の中で無機フィラーを加熱加圧することを特徴とする無機フィラーの精製方法。

【請求項2】 90重量%以上のシリカを含有する無機フィラーを用いることを特徴とする請求項1に記載の無機フィラーの精製方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、半導体装置の封止材に用いられる無機フィラーの精製方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来より、回路基板にIC等の半導体素子を実装して半導体装置を形成することが行われているが、半導体素子は封止材により被覆されて保護されている。封止材としては一般的にエポキシ樹脂などの樹脂が用いられているが、半導体素子に多用されているシリコンの熱膨張係数に封止材の熱膨張係数を近づけるために、樹脂に非晶質シリカや結晶シリカなどの無機フィラーを充填して分散させることが行われている。特に、封止材の放熱性を考慮する場合は結晶シリカの無機フィラーが好適に用いられている。

【0003】ところでDRAMのような半導体素子は $\alpha$ 線等の放射線によってソフトエラー（誤動作）を起こし易い。従って、無機フィラー中のトリウム（Th）やウラン（U）などの放射性元素を少なくすることは半導体装置の信頼性の向上のために非常に重要である。そこで放射性元素の含有量が少ない高純度の無機フィラーを得るために、各種の方法で無機フィラーを製造することが行われており、例えば、精製した塩化シリコン（ $\text{SiCl}_4$ ）などの塩化物の加水分解物（フュームドシリカ等）を酸素中で燃焼する方法や、精製した珪酸ソーダ等のナトリウム塩を酸溶液中で加水分解する方法や、高純度のシリコンを高温で加熱する方法などが採用されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし上記いずれの方法も複雑な工程を経て高純度の無機フィラーを得るものであって、簡単に高純度の無機フィラーを得ることができないという問題があった。本発明は上記の点に鑑みてなされたものであり、高純度の無機フィラーを簡単に得ることができる無機フィラーの精製方法を提供することを目的とするものである。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明の請求項1に記載の無機フィラーの精製方法は、200～450℃、20～60MPaの高温高圧水又は超臨界水1の中で無機フィラー2を加熱加圧することを特徴とするものである。また本発明の請求項2に記載の無機フィラーの精製方法

は、請求項1の構成に加えて、90重量%以上のシリカを含有する無機フィラー2を用いることを特徴とするものである。

【0006】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を説明する。無機フィラー2としては封止材に用いられるものであれば特に種類は限定されないが、シリカ（ $\text{SiO}_2$ ）、アルミナ、チタニア、マグネシア、酸化硼素等の酸化物、窒化硼素や窒化アルミニウム等の窒化物などを用いることができる。これら無機フィラー2は結晶質、非晶質のいずれであつてもよく、またこれらを単独であるいは複数種組み合わせ用いてもよいが、低膨張であること、高純度のものが得易いこと、比較的安価なものであることなどの条件を考慮すると、シリカを用いるのが最も好ましい。

【0007】上記無機フィラー2の精製には反応釜3が用いられる。図1に示すように反応釜3は内部に反応槽部7を設けた反応釜本体4と、反応釜本体4（反応槽部7）の開口を塞ぐ蓋5と、反応釜本体4と蓋5を連結する固定ネジ6で構成されており、固定ネジ6を締めつけることによって反応釜3（反応槽部7）は密閉されるようになっている。また、反応釜本体4の周囲にはヒーターや冷却装置を備えるジャケット11が設けられている。さらに、反応釜3にはバルブ10を備えた排気管12が設けられており、その一端は反応槽部7に、他端は反応槽部7の外側にそれぞれ開口させてある。9は貯水槽であつて、貯水槽9と反応釜3の反応槽部7は供給管13により接続されている。8は供給管13の途中に設けられたポンプである。尚、反応釜3は上記のようなものに特に限定されない。

【0008】このような反応釜3を用いて無機フィラー2を精製するにあたっては、まず、無機フィラー2を反応釜3の反応槽部7の中に入れ、蓋5により反応槽部7を閉塞すると共に固定ネジ6を締めつけることによって反応槽部7を密閉する。次に、ポンプ8を作動させて貯水槽9から供給管13を通じて水を反応槽部7に供給する。この時、バルブ10を開いておくことによって水で反応槽部7の空気を排気管11から排出するようにする。次に、ジャケット11で反応釜本体4を加熱することによって、反応槽部7に高温高圧水又は超臨界水1を発生させる。

【0009】この時、高温高圧水又は超臨界水1の温度は200～450℃であり、また高温高圧水又は超臨界水1の圧力（反応槽部7内の圧力）は20～60MPaにする必要がある。高温高圧水又は超臨界水1の温度が200℃未満であつたり高温高圧水又は超臨界水1の圧力が20MPa未満であつたりすると、温度や圧力が低過ぎて無機フィラー2に含有されている放射性元素が高温高圧水又は超臨界水1に溶出する速度が遅くなって、無機フィラー2の放射性元素の含有量を少なくすること

ができない。また、高温高压水又は超臨界水1の温度が450℃を超えたり高温高压水又は超臨界水1の圧力が60MPaを超えたりすると、無機フィラー2の放射性元素の含有量を少なくすることができないが、その理由は明らかでない。尚、高温高压水又は超臨界水1の温度はジャケット11による反応釜3の加熱量を増減させることによって調整することができ、また、高温高压水又は超臨界水1の圧力はポンプ8の加圧力やバルブ10の開閉によって調整することができる。

【0010】このように反応釜3で高温高压水又は超臨界水1を発生させてこの高温高压水又は超臨界水1で無機フィラー2を0.1～5時間加熱加圧処理することによって、無機フィラー2に含まれる放射性元素を高温高压水又は超臨界水1に溶出させて除去する。次に、冷却した後、無機フィラー2と水とを濾過によって分離することによって、放射性元素の含有量の少ない高純度の無機フィラー2を得ることができる。尚、超臨界水は蒸気になる前の水であって、温度条件により高温高压水から変化するものである。

【0011】上記のように本発明では、200～450℃の温度で20～60MPaの圧力である高温高压水又は超臨界水1で無機フィラー2を加熱加圧処理するという簡単な工程で、トリウム及びウランの濃度がともに1ppb以下の高純度の無機フィラー2を得ることができる。

【0012】

【実施例】以下、本発明を実施例によって詳述する。

(実施例1乃至5、及び比較例1、2)放射性元素としてトリウム(Th)を4.0ppb、ウラン(U)を7.2ppbそれぞれ含有するシリカ(平均粒径が18μmでSiO<sub>2</sub>の含有率が98重量%の無機フィラー2)100gを反応釜3の反応槽部7(容量500cc)に入れ、ポンプ8を作動させて貯水槽9から供給管

13を通じて水を反応槽部7に供給して加圧し、反応釜3をジャケット11で加熱することによって反応槽部7に高温高压水又は超臨界水1を発生させた。反応槽部7には表1に示す温度条件及び圧力条件の高温高压水又は超臨界水1が生じ、その中でシリカを2時間加熱加圧処理した。次に冷却してシリカと水とを濾過により分離することによって精製されたシリカを得た。尚、温度が350℃以上のもの(実施例3、5、比較例2)は水が超臨界水となっており、それ以外のもの(実施例1、2、4、比較例1)の水は高温高压水である。

【0013】(実施例6乃至10及び比較例3、4)放射性元素としてトリウム(Th)を4.9ppb、ウラン(U)を9.0ppbそれぞれ含有するアルミナ(平均粒径が25μmの無機フィラー2)100gを反応釜3の反応槽部7(容量500cc)に入れ、ポンプ8を作動させて貯水槽9から供給管13を通じて水を反応槽部7に供給して加圧し、反応釜3をジャケット11で加熱することによって反応槽部7に高温高压水又は超臨界水1を発生させた。反応槽部7には表2に示す温度条件及び圧力条件の高温高压水又は超臨界水1が生じ、その中でアルミナを2時間加熱加圧処理した。次に冷却してアルミナと水とを濾過により分離することによって精製されたアルミナを得た。尚、温度が350℃以上のもの(実施例8、10)は水が超臨界水となっており、それ以外のもの(実施例6、7、9、比較例3、4)の水は高温高压水である。

【0014】上記実施例1乃至10、及び比較例1乃至4において、処理前後の無機フィラー2の放射性元素の含有量を測定した。放射性元素の含有量は、無機フィラー2をフッ酸に溶解させた後、ICP重量法によって測定した。結果を表1、2に示す。

【0015】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2
処理条件	温度(℃)	200	250	350	300	450	150	550
	圧力(MPa)	40	20	30	60	25	15	30
処理後の含有量	Th(ppb)	0.8	0.8	0.4	0.8	1.0	3.2	1.5
	U(ppb)	0.9	0.9	0.5	0.8	1.0	6.7	1.8

【表2】

【0016】

		実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	比較例 3	比較例 4
処理 条件	温度 (℃)	200	300	350	250	450	300	100
	圧力 (MPa)	30	20	25	60	50	80	25
処理 後の 含有 量	Th (ppb)	0.8	0.9	0.5	0.8	1.0	1.7	4.1
	U (ppb)	0.9	0.9	0.6	1.0	0.9	1.9	6.4

【0017】表1、2から明らかなように実施例1乃至10では、放射性元素の含有量を大幅に減少させてトリウム(Th)やウラン(U)の含有量がともに1ppb以下である高純度の無機フィラー2を得ることができたが、比較例1乃至4では高温高压水又は超臨界水1の温度条件が200～450℃の範囲から逸脱したり、高温高压水又は超臨界水1の圧力条件が20～60MPaの範囲から逸脱したりしているために、高純度の無機フィラー2を得ることができなかった。

【0018】

【発明の効果】上記のように本発明の請求項1に記載の発明は、200～450℃、20～60MPaの高温高压水又は超臨界水の中で無機フィラーを加熱加圧するので、高温高压水又は超臨界水で無機フィラーを加熱加圧

処理するという簡単な工程で無機フィラーに含まれる放射性元素を高温高压水又は超臨界水に溶出させて除去することができ、簡単に高純度の無機フィラーを得ることができるものである。

【0019】また本発明の請求項2に記載の発明は、90重量%以上のシリカを含有する無機フィラーを用いるので、半導体素子の封止材に好適に使用される高純度のシリカを簡単に得ることができるものである。

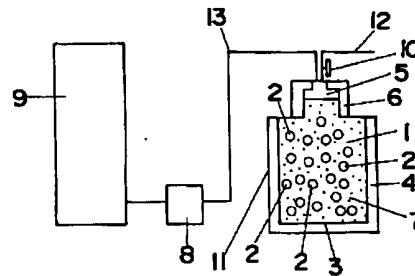
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施の形態の一例を示す概略図である。

【符号の説明】

- 1 高温高压水又は超臨界水
- 2 無機フィラー

【図1】



- 1 高温高压水又は超臨界水
- 2 無機フィラー